







## Open Archive Toulouse Archive Ouverte

OATAO is an open access repository that collects the work of Toulouse researchers and makes it freely available over the web where possible

This is an author's version published in: <http://oatao.univ-toulouse.fr/21568>

**Official URL:** <https://doi.org/10.1002/cjce.5450770604>

### To cite this version:

Bang, Woong  and Billet, Anne-Marie  and Delmas, Henri  and Bascoul, Aimé  *Effet d'un agitateur mécanique sur l'hydrodynamique et le transfert de matière gaz—liquide en réacteur gzosiphon*. (1999) *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 77 (6). 1105-1112. ISSN 0008-4034

Any correspondence concerning this service should be sent  
to the repository administrator: [tech-oatao@listes-diff.inp-toulouse.fr](mailto:tech-oatao@listes-diff.inp-toulouse.fr)

# Effet d'un agitateur mécanique sur l'hydrodynamique et le transfert de matière gaz-liquide en réacteur gazosiphon

WOONG BANG<sup>1</sup>, ANNE-MARIE DUQUENNE, HENRI DELMAS<sup>1</sup> et AIMÉ BASCOUL<sup>2\*</sup>

*Laboratoire de Génie chimique UMR 5503, (<sup>1</sup> ENSIGC, <sup>2</sup> IUT Paul Sabatier), 18 chemin de la loge 31078, Toulouse Cedex 9, France*

Cette étude expérimentale décrit l'effet d'un agitateur sur l'hydrodynamique et le transfert de matière à l'intérieur d'un contacteur airlift à boucle interne. La contribution des deux éléments moteurs (gaz et agitateur) est identifiée. Suivant les conditions de fonctionnement, ou bien ces deux effets s'ajoutent et favorisent la circulation du liquide ou bien ces effets sont opposés, la vitesse du liquide est alors réduite. Par contre, en ce qui concerne le transfert gaz-liquide, l'utilisation de l'agitateur est bénéfique puisque, pour certaines conditions opératoires, le coefficient de transfert est multiplié par 4 par rapport à celui obtenu sans agitation. L'analyse des diverses contributions énergétiques dans l'appareil montre que la présence de l'agitateur est justifiée uniquement dans les cas où le débit de gaz doit rester faible.

This experimental work describes the influence of an impeller on hydrodynamics and mass transfer in an internal loop contactor. Contributions of each motion source (gas and impeller) are identified. Depending on operating conditions, these two factors may be additive and enhance liquid circulation or they may be opposite and reduce liquid velocity. For mass transfer, however, the impeller gives good results under some specific conditions, as the coefficient  $k_L a$  becomes four times larger than the value obtained without mechanical agitation. The analysis of the different energy sources shows that the use of an impeller in this airlift can be justified when the gas flow rate has to be kept moderate.

Mots clés: réacteur airlift, système d'agitation, hydrodynamique, transfert de matière.

La conception optimale des réacteurs catalytiques triphasiques nécessite des connaissances multiples aussi bien en cinétique chimique, en cinétique de transfert de matière ou de chaleur, ou encore du point de vue de l'écoulement des phases en circulation.

Les réacteurs à gazosiphon constituent une alternative intéressante par rapport aux réacteurs polyphasiques classiques (réacteurs agités, colonnes à bulles). Leur principe de fonctionnement est simple. Ils sont constitués de deux colonnes principales reliées à leurs extrémités inférieure et supérieure. A l'intérieur de l'une d'elles, le gaz est injecté provoquant une différence de masse volumique entre les deux compartiments. La circulation est ainsi assurée avec un écoulement gaz-liquide ascendant dans une colonne et un écoulement descendant dans l'autre. Ces réacteurs permettent de travailler dans des gammes de vitesses importantes assurant un échange entre phases très satisfaisant et améliorant les performances de productivité.

Ces types de réacteurs fonctionnent soit en boucle interne (colonnes concentriques), soit en boucle externe (colonnes parallèles), et peuvent être utilisés dans de nombreux domaines d'applications industrielles comme la production en continu d'acide citrique ou la culture de différents types de levure ou bactéries (Chisti et al., 1987) ou encore la croissance de micro-organismes (Seigel et Robinson, 1992).

Notons que pour ce type de réacteur, la circulation du liquide et le transfert de matière dépendent essentiellement du débit de gaz dans le réacteur. Cependant, dans le cas d'un réactif gazeux toxique, coûteux ou non recyclable, ou bien lorsque la sélectivité de la réaction est réduite par un excès de gaz, le débit de gaz doit rester faible. Dans ce cas, pour maintenir de bonnes conditions de circulation du liquide, on peut envisager une agitation mécanique. De plus, dans le cas de réacteurs triphasiques où le catalyseur est sous forme

granulaire, la mise en place d'un système d'agitation au fond d'un réacteur airlift permet la mise en suspension des particules et assure une bonne homogénéité du solide divisé. L'objectif d'une telle étude est d'identifier les caractéristiques hydrodynamiques et de transfert de matière d'un tel réacteur et de les comparer à celles déjà connues d'un réacteur airlift « classique » sans agitation mécanique.

## Étude bibliographique

Rappelons que l'alimentation du gaz à l'intérieur d'un réacteur airlift à boucle interne est effectuée en fond de colonne dans la partie centrale, entraînant une différence de masse volumique entre les deux compartiments. La partie centrale où la circulation des phases est ascendante est appelée « riser » tandis que la zone annulaire où l'écoulement des phases est descendant est appelée « downcomer ».

## FONCTIONNEMENT DES RÉACTEURS AIRLIFT

Le transfert de matière résulte de l'hydrodynamique et plus précisément des conditions d'écoulement dans le réacteur et de l'aire d'échange totale.

Les principales caractéristiques hydrodynamiques d'un réacteur airlift sont les rétentions de chaque phase, la vitesse de circulation du liquide, le temps de mélange ou encore la dispersion axiale. Ces grandeurs dépendent des conditions opératoires du système étudié : les caractéristiques géométriques du réacteur, le débit de gaz, la teneur en solide ou encore la vitesse de rotation de l'agitateur. L'influence de la vitesse du gaz, qui généralement est le principal paramètre opératoire, est une donnée fondamentale. Elle est directement liée à la rétention gazeuse et donc à la différence de densité entre le riser et le downcomer induisant ainsi une modification de la vitesse de circulation du liquide. L'augmentation du débit de gaz qui accélère la circulation du liquide conduit à l'entraînement des bulles dans le downcomer et ainsi augmente la rétention gazeuse dans chaque zone.

\*Auteur auquel la correspondance doit être adressée. Adresse électronique : bascou1@gch.iut-tlse3.fr

La vitesse de circulation du liquide joue un rôle prépondérant sur les phénomènes de turbulence et sur le transfert de matière gaz-liquide. Comme pour la rétention gazeuse, la nature du liquide, la présence de solide, la viscosité du milieu ou encore la géométrie du système influencent la circulation du liquide. Plusieurs corrélations sont proposées mais une des plus utilisées est celle de Chisti et Moo-Young (1993), établie à partir d'un bilan d'énergie sur le réacteur. Elle sera explicitée dans le paragraphe suivant. Pour ce type de réacteur, la suspension complète des particules solides est assurée si la vitesse de gaz est supérieure à un seuil appelé vitesse critique de gaz.

La mise en place d'un système d'agitation en fond de réacteur va permettre une mise en suspension des solides même si la vitesse critique de gaz n'est pas atteinte. Par ailleurs, plusieurs études ont également été effectuées en utilisant un système d'agitation mécanique soit en colonne à bulles (Dutta et Pangarkar, 1995), soit en réacteur agité gaz-liquide (Nuygen, 1993 ; Favre et al., 1994 ; Anastassiades, 1995), soit en réacteur airlift (Keitel et Onken, 1981). Dans le cas d'un réacteur agité auto-aspirant, Nguyen (1993) et Anastassiades (1995) ont testé les performances de plusieurs systèmes d'agitation et ils ont montré que la puissance dissipée par l'agitateur diminue en présence de gaz, quel que soit le système d'agitation étudié. Dans un réacteur à boucle interne, Favre et al. (1994) ont montré qu'en utilisant un agitateur à écoulement axial, la circulation du liquide est améliorée et le temps de mélange est réduit.

Enfin, concernant le transfert de matière, Keitel et Onken (1981) ont mesuré l'influence de la vitesse de rotation d'un agitateur (turbine Rushton) sur le transfert de matière gaz-liquide comme cela a été fait en cuve agitée. Le coefficient de transfert de matière  $k_L a$  dépend des conditions d'injection de gaz mais également des conditions d'agitation. Ces auteurs proposent une corrélation générale du type :

$$k_L a = a \left( \frac{P_A}{V} \right)^\alpha \left( \frac{P_{ag}}{V} \right)^\beta \dots \dots \dots (1)$$

qui a l'avantage de bien identifier séparément la contribution du gaz et celle du système d'agitation.

#### BILAN ÉNERGÉTIQUE

La vitesse de circulation du liquide est déterminée à partir d'un bilan d'énergie sur le réacteur. Dans le cas d'un réacteur gazosiphon classique, la majeure partie de l'énergie provient de l'expansion isotherme du gaz lorsqu'il monte dans la zone d'écoulement ascendant, tandis que la dissipation d'énergie est essentiellement due aux frottements lors du changement de direction dans les parties inférieure et supérieure du réacteur, à la circulation du liquide dans le sillage des bulles qui montent dans la partie ascendante, aux éventuelles bulles de gaz qui circulent ou stagnent dans la zone d'écoulement descendant, et enfin aux pertes de pression par friction sur les parois de l'appareil.

Chaque terme est détaillé par Chisti et Moo-Young (1993). Le bilan conduit alors à l'expression suivante pour la vitesse de circulation du liquide :

$$u_l = \left( \frac{2gH_d(\varepsilon_{gr} - \varepsilon_{gd})}{K_t/(1 - \varepsilon_{gr})^2 + K_b(A_r/A_d)^2(1 - \varepsilon_{gd})^2} \right)^{0.5} \dots \dots (2)$$

où  $A_d$  et  $A_r$  désignent respectivement l'aire de la zone d'écoulement descendant et ascendant, et où  $K_t$  et  $K_b$  sont les coefficients de pertes de charge respectifs au niveau du haut et du bas du tube. Pour arriver à ce résultat, plusieurs simplifications doivent être faites par rapport au bilan énergétique global. Une étude très récente de Gavrilescu et al. (1997) propose une modélisation complète de la vitesse de circulation du liquide à l'intérieur du réacteur qui tient compte de la variation des coefficients  $K_b$  et  $K_t$  liés à la géométrie du réacteur et, en particulier, aux hauteurs de recirculation en fond et en tête du réacteur.

Dans le cas de notre étude, les pertes de charges par frottement ont été estimées par Bang (1996). Il a montré que les pertes de charge correspondant au changement de direction en fond du réacteur sont beaucoup plus fortes que celles de la partie supérieure ou encore que les frottements dans le riser et le downcomer. Dans ces conditions, on peut négliger  $K_t$  et l'expression (2) devient :

$$u_l = \left( \frac{2gH_d(\varepsilon_{gr} - \varepsilon_{gd})}{K_b(A_r/A_d)^2(1 - \varepsilon_{gd})^2} \right)^{0.5} \dots \dots \dots (3)$$

Nous proposons d'utiliser la corrélation (4) proposée par Chisti et Moo-Young (1993) pour estimer la valeur de  $K_b$  :

$$K_b = 11,4 \left( \frac{A_d}{A_b} \right)^{0.789} \dots \dots \dots (4)$$

où  $A_b$  désigne l'aire libre de passage du fluide entre les zones ascendante et descendante, en pied de réacteur. On peut ainsi estimer la vitesse de circulation du fluide dans le cas d'un réacteur airlift à boucle interne connaissant les taux de rétention gazeuse dans les zones d'écoulement ascendant ou descendant. Pour notre étude, rappelons que la mise en place d'un système d'agitation mécanique favorise, entre autre, la circulation du liquide. Il faut donc tenir compte de l'influence de l'agitateur dans la détermination du bilan global. Ce point sera développé lors de la présentation des résultats expérimentaux.

#### Dispositif expérimental

##### APPAREILLAGE

Le dispositif expérimental (Figure 1) est constitué d'un ensemble de deux colonnes concentriques, d'un système d'agitation et d'un système d'injection de gaz. La colonne interne a un diamètre de 60 mm; le tube externe a un diamètre de 94 mm. La section centrale et la section annulaire sont du même ordre de grandeur, de manière à ce que la vitesse du liquide soit sensiblement la même dans les deux compartiments. La colonne interne est placée à 14 mm au dessus du fond du réacteur. Le distributeur de gaz se trouve au fond de la colonne centrale. Le système d'agitation, placé à 20 mm du fond du réacteur, est une hélice marine. De plus, quatre chicanes ont été placées dans la colonne interne pour casser l'écoulement tangentiel qui tend à concentrer les bulles sur l'axe.

Les différents systèmes retenus pour cette étude sont l'azote ou l'air pour le gaz, l'eau et des solutions de glucose pour le liquide, et des billes d'alumine pour les solides. Le débit de gaz alimentant le réacteur airlift varie de 0 à  $1,13 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$ , ce qui correspond à une vitesse superficielle de gaz comprise

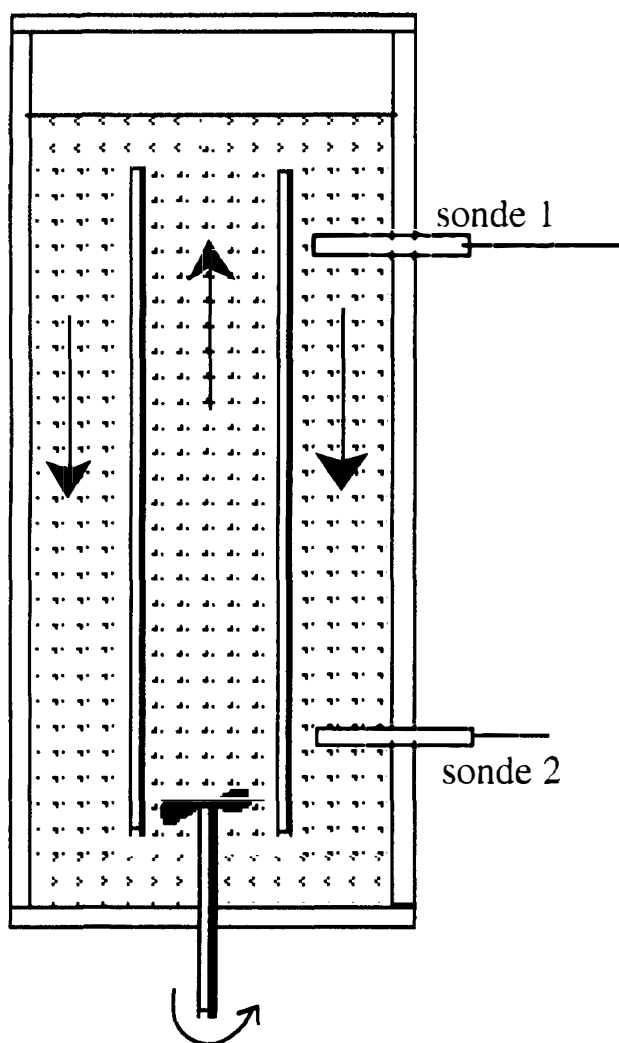


Figure 1 — Dispositif expérimental.

entre 0 et 4,0 cm/s. Les propriétés des liquides (masse volumique et viscosité) sont rassemblées dans le tableau ci-dessous.

Liquide étudié	$\rho$ (kg/m <sup>3</sup> )	$\mu$ (Pa.s)
eau	1000	0,001
glucose à 5% en masse	1017,5	0,00114
glucose à 25% en masse	1103	0,00245
glucose à 38,5% en masse	1165	0,0049

La phase solide occupe dans le réacteur, une fraction massique  $\varepsilon_s$  variant de 0 à 4%. Les billes d'alumine ont une masse volumique de 1581 kg/m<sup>3</sup>; deux granulométries de billes ont été testées: 50  $\mu$ m ou 100  $\mu$ m.

Les expériences ont été menées à 20°C  $\pm$  1°C et sous pression atmosphérique.

#### MÉTHODES DE MESURES HYDRODYNAMIQUES

La rétention gazeuse globale  $\varepsilon_g$  est évaluée par différence de hauteur de liquide en réacteur aéré ou non aéré. La rétention dans la partie annulaire  $\varepsilon_{gd}$  est déduite de mesures de pression hydrostatique en pied et en tête de gazosiphon. Par bilan sur le volume total de gaz, on obtient la rétention  $\varepsilon_{gr}$  dans la jambe centrale.

Pour identifier la vitesse de circulation du liquide  $u_p$ , nous avons choisi une technique conductimétrique. La méthode

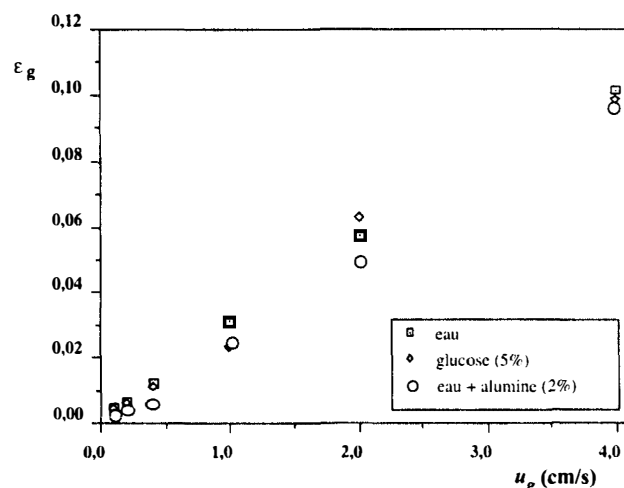


Figure 2a — Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse du gaz (sans agitation).

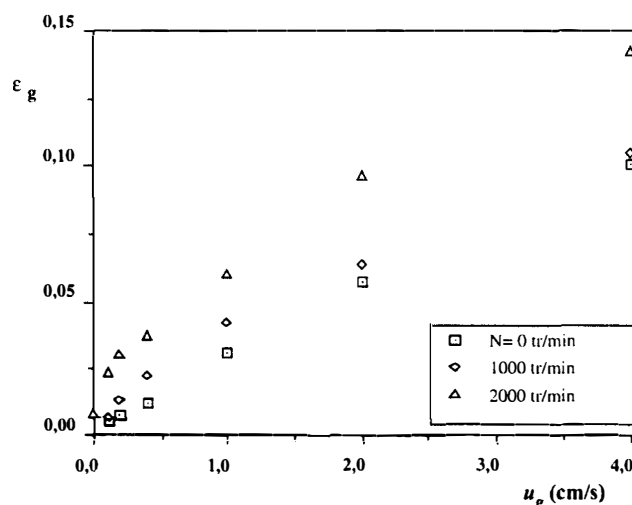


Figure 2b — Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse du gaz (avec agitation).

consiste à injecter à la base de la colonne centrale un traceur électrolytique (solution de KCl, par exemple) et à suivre l'évolution dans le temps de sa concentration à deux niveaux différents dans le réacteur.

#### DÉTERMINATION DE $k_L a$

Le coefficient volumétrique de transfert de matière  $k_L a$  est évalué par une méthode dynamique : le réacteur est alimenté en azote afin d'éliminer tout oxygène dissous dans la phase liquide. Puis l'azote est remplacé par de l'air et la concentration en oxygène dans le liquide  $C_L(t)$  est suivie au cours du temps au moyen d'une sonde à oxygène.

La dynamique de réponse de la sonde montre un temps caractéristique négligeable devant le temps d'expérience. Pour la mesure de  $k_L a$ , on suppose que les phases gazeuses et liquides présentes dans le réacteur sont parfaitement mélangées, et que  $C_L^*$ , la concentration en oxygène à la surface des bulles, est constante. Le bilan sur l'absorption, sans réaction chimique, de l'oxygène s'écrit alors :

$$\frac{dC_L(t)}{dt} = k_L a [C_L^* - C_L(t)] \quad \dots \dots \dots (5)$$

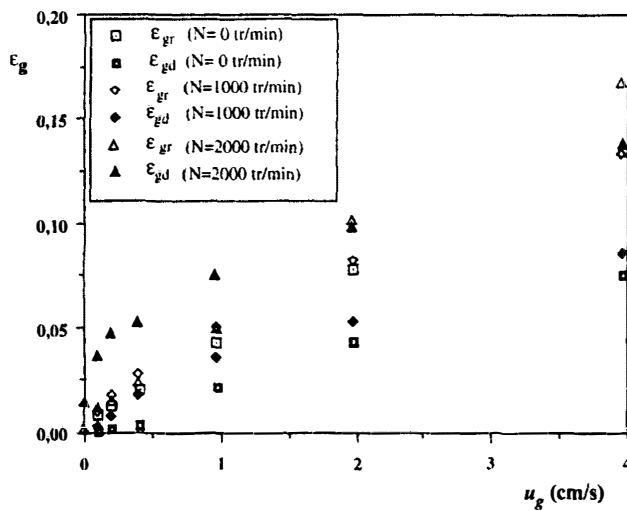


Figure 3 — Rétention gazeuse moyenne (riser et downcomer) en fonction de la vitesse du gaz.

L'intégration de l'équation (5) permet d'identifier  $k_L a$  :

$$\ln \left[ \frac{C_L^* - C_L(t)}{C_L^* - C_L(t=0)} \right] = -k_L a t \dots \dots \dots (6)$$

## Résultats expérimentaux

### ÉTUDE HYDRODYNAMIQUE

#### Présentation des résultats

Rappelons que l'objectif de ce travail est d'identifier l'influence du système d'agitation sur le taux de rétention de gaz et la vitesse de circulation du liquide. Quatre paramètres ont été analysés :

- Influence du débit de gaz
- Influence de la viscosité du liquide pour un produit newtonien
- Influence de la concentration en solide
- Influence de la vitesse de rotation de l'agitateur.

Une première série de résultats expérimentaux est présentée sur la Figure 2a. Ces résultats montrent l'évolution de  $\varepsilon_g$  en réacteur airlift classique et mettent en évidence l'influence du débit de gaz, de la viscosité du milieu, ou encore de la concentration en solide. On retrouve les conclusions classiques obtenues pour d'autres études où  $\varepsilon_g$  augmente fortement avec la vitesse du gaz, diminue légèrement lorsque la concentration du solide augmente ou la viscosité du liquide augmente. La Figure 2b met en avant l'influence de la vitesse de rotation de l'agitateur pour un système diphasique (air/eau). On note, pour un même débit de gaz, une augmentation de  $\varepsilon_g$  modérée pour  $N = 1000$  tr/min et beaucoup plus forte pour  $N = 2000$  tr/min. De plus, pour un débit de gaz nul, ce taux de rétention global n'est pas égal à zéro. En effet, expérimentalement nous avons observé pour  $N = 2000$  tr/min, un phénomène d'auto-aspiration de l'air au niveau du séparateur en tête de colonne. A  $N = 2000$  tr/min et pour un système triphasique, la mise en suspension des particules solides est assurée même à très faible débit de gaz ce qui n'est pas possible sans agitation.

D'une manière plus détaillée, la Figure 3 traduit les évolutions de la rétention gazeuse à l'intérieur du riser et du downcomer. Pour le cas classique ( $N = 0$  tr/min) les valeurs de  $\varepsilon_g$  sont toujours supérieures à celles de  $\varepsilon_{gd}$  ce qui induit

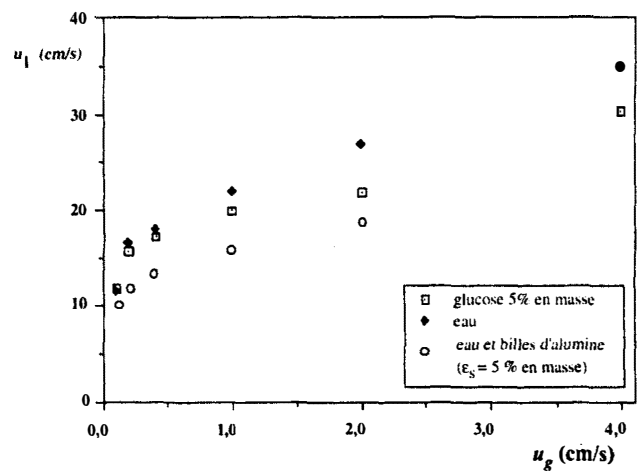


Figure 4a — Vitesse de circulation du liquide en fonction de la vitesse du gaz (sans agitation).

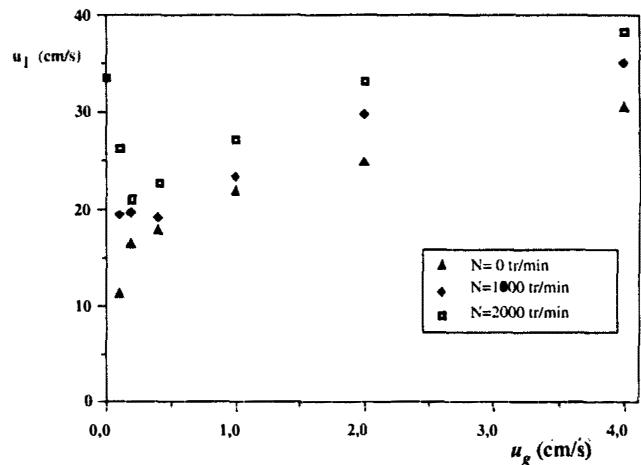


Figure 4b — Vitesse de circulation du liquide en fonction de la vitesse du gaz (avec agitation).

comme nous l'avons déjà dit, une circulation du liquide ascendant dans le riser et descendante dans le downcomer. A  $N = 1000$  tr/min, comme il n'y a pas d'auto-aspiration, les valeurs de  $\varepsilon_{gr}$  sont toujours supérieures à  $\varepsilon_{gd}$  et sont systématiquement plus élevées que celles enregistrées pour  $N = 0$ . Le système d'agitation provoque la rupture des bulles de gaz et augmente ainsi la rétention gazeuse. Par contre, en raison du phénomène d'auto-aspiration d'air, pour  $N = 2000$  tr/min,  $\varepsilon_{gd}$  est supérieur à  $\varepsilon_{gr}$  aux faibles débits de gaz. Puis, pour des valeurs croissantes de  $u_g$ ,  $\varepsilon_{gr}$  augmente rapidement et devient supérieur à  $\varepsilon_{gd}$  pour  $u_g = 2$  cm/s. Ce résultat, a priori surprenant, complique la compréhension de l'écoulement puisque le phénomène d'auto-aspiration va freiner la circulation du liquide et va s'opposer à l'effet de l'agitateur. Nous reviendrons sur ce point lors de l'interprétation des résultats. L'influence de l'agitation est similaire pour une solution visqueuse ou pour un système triphasique (Bang, 1996).

Comme pour l'étude de  $\varepsilon_g$ , la Figure 4a présente l'évolution de la vitesse de circulation du liquide en fonction de la vitesse de gaz, dans le cas d'un réacteur airlift classique. On retrouve les conclusions d'autres études à savoir que la vitesse du liquide est très fortement liée à celle du gaz et qu'elle est légèrement plus faible si la viscosité du liquide augmente ou si la concentration en solide augmente. Cette diminution est liée, dans les deux cas, à la coalescence des bulles qui réduit la rétention gazeuse.

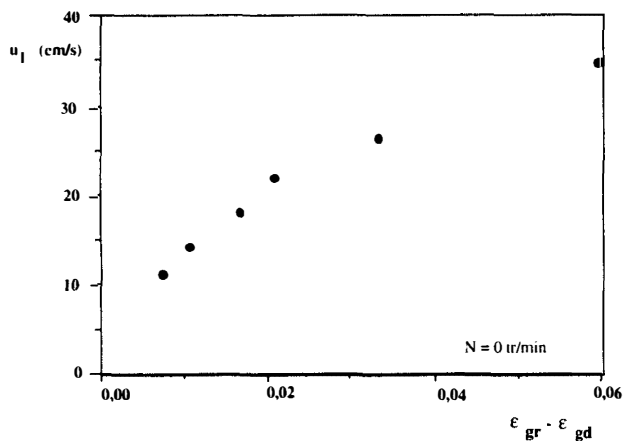


Figure 5 — Vitesse de circulation du liquide en fonction de la différence de rétention gazeuse entre le riser et le downcomer (sans agitation).

La Figure 4b obtenue avec le système air/eau, met en évidence le rôle complexe de l'agitateur. A fortes vitesses de gaz, l'effet de l'agitateur est assez limité (même à vitesse de rotation élevée). Par contre, l'utilisation de l'agitateur à forte vitesse ( $N = 2000$  tr/min) et sans injection de gaz permet d'atteindre des valeurs de vitesse de circulation du liquide très élevées et comparables à celles enregistrées pour des fortes valeurs de vitesse de gaz ( $u_g = 4$  cm/s) sans agitation. Ainsi, la circulation du liquide dépend de deux paramètres dont la conjonction est complexe. Alors que sans agitation, la vitesse de circulation croît régulièrement avec le débit de gaz, on remarque qu'à  $N = 2000$  tr/min, et à faible vitesse de gaz, les effets s'opposent et la circulation liquide ralentit. A forte vitesse de gaz ( $u_g > 2$  cm/s), la circulation redevient plus rapide que sans gaz mais bien en dessous de la simple addition des deux effets moteurs. A vitesse de rotation intermédiaire ( $N = 1000$  tr/min), les résultats sont également intermédiaires et le minimum de vitesse de circulation est très peu marqué.

Cet ensemble de résultats complexes peut s'interpréter de deux façons éventuellement non exclusives. D'une part, en ajoutant du gaz dans le riser, on fait chuter l'efficacité de l'agitateur. Ce phénomène est bien connu au niveau de la puissance d'agitation qui diminue en milieu gaz-liquide, en particulier en raison de l'accumulation de gaz au voisinage des pales de l'agitateur. D'autre part, l'agitation mécanique doit conduire à des bulles plus petites donc plus facilement recirculées dans le downcomer et au phénomène d'auto-aspiration à faible  $u_g$ , ce qui tendrait à réduire l'écart de rétention gazeuse entre les deux zones : écart qui constitue le moteur d'écoulement du gazosiphon.

#### Analyse des résultats

Il faut maintenant préciser l'influence exacte du système d'agitation et identifier séparément les deux effets. En premier lieu, on peut parfaitement identifier l'effet du gaz puisque la Figure 5 indique les valeurs de vitesse du liquide obtenues en fonction de la différence de rétention gazeuse entre les deux compartiments pour un réacteur airlift sans agitation.

Pour modéliser nos résultats expérimentaux, comme nous l'avons indiqué dans la partie bibliographique, nous reprenons le bilan énergétique complet développé par Chisti et Moo-

TABLEAU 1  
Vitesses de circulation de liquide : valeurs expérimentales et valeurs calculées à l'aide de l'équation 8

$N$ (tr/min)	$u_g$ (cm/s)	$\epsilon_{gr} - \epsilon_{gd}$	$u_L$ (cm/s) mesurée	$h_{ag}$ (cm) calculé
0	0,1	0,008	11,33	0
	0,2	0,010	14,13	0
	0,4	0,017	17,94	0
	1	0,021	21,94	0
	2	0,034	26,82	0
	4	0,060	34,78	0
1000	0		15,78	0,023
	0,1	0,008	19,39	0,020
	0,2	0,010	20,83	0,020
	0,4	0,011	21,65	0,022
	1	0,014	23,29	0,025
	4	0,049	34,84	0,029
2000	0	-0,010	33,65	0,127
	0,1	-0,025	26,22	0,118
	0,2	-0,032	22,11	0,115
	0,4	-0,023	25,61	0,114
	1	-0,013	28,15	0,110
	2	-0,005	33,20	0,102
	4	0,019	38,26	0,091

Young (1993) basé sur les différentes pertes d'énergie dans un réacteur airlift gaz-liquide.

Pour nos expériences, nous avons identifié la valeur de  $K_b$  de l'équation (4) qui est liée à la perte de charge au fond du dispositif expérimental ( $K_b = 11,8$ ). Ainsi, pour l'ensemble des expériences effectuées sans agitation mécanique, les vitesses de circulation du liquide obtenues expérimentalement sont en accord avec celles calculées à partir de la relation 4.

Pour notre étude avec le système d'agitation mécanique, le bilan énergétique, présenté ci-dessus pour un airlift classique, doit être complété par l'énergie apportée par le système d'agitation. Généralement la puissance dissipée dans un liquide par l'agitateur a pour expression :

$$P_{ag} = N_p \rho N^3 D_a^5 \dots \dots \dots (7)$$

Cependant, seule une petite partie de l'énergie fournie par l'agitateur est utilisée pour la circulation du liquide dans le sens axial. La majeure partie de l'énergie disponible se transforme en turbulence et en énergie thermique. Nous proposons que l'énergie efficace apportée par l'agitation pour la circulation du liquide soit assimilée à un gain d'énergie potentielle de la forme :

$$E_{ag} = \rho g h_{ag} A_r u_l \dots \dots \dots (8)$$

ce qui conduit, intégrant séparément les effets du gaz et de l'agitateur, à l'expression :

$$u_l = \left( \frac{2gH_d(\epsilon_{gr} - \epsilon_{gd}) + gh_{ag}}{K_b(A_r/A_d)^2(1 - \epsilon_{gd})^{+2}} \right)^{0,5} \dots \dots \dots (9)$$

Comme il n'est pas possible de mesurer expérimentalement  $h_{ag}$ , il faut identifier ce paramètre. En effet, on connaît par l'expérience, la vitesse résultante  $u_l$  du liquide lorsque les deux éléments moteurs interviennent (gaz et agitateur, Tableau 1). Il est alors possible de calculer  $h_{ag}$  à l'aide de la relation 9, et donc de connaître l'effet réel de l'agitateur.

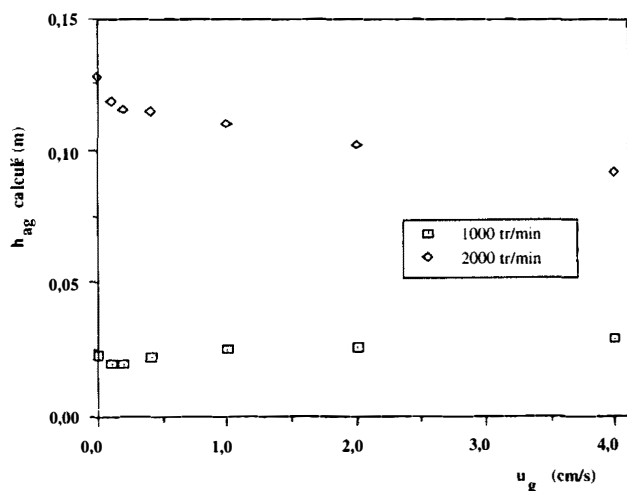


Figure 6 — Différence de hauteur du liquide "liée à l'agitateur" en fonction de la vitesse du gaz (équation 9).

Le Tableau 1 et la Figure 6 présentent l'ensemble des résultats obtenus en milieu diphasique. On peut noter que l'effet de l'agitateur dépend de la vitesse de rotation utilisée. Ainsi, pour  $N = 1000$  tr/min, on a  $h_{ag} = 0,023$  m et pour  $N = 2000$  tr/min, on a en moyenne  $h_{ag} = 0,123$  m. On retrouve bien l'influence « classique » de l'agitateur puisque  $h_{ag}$  est globalement proportionnel à  $N^3$ . De plus, pour  $N = 2000$  tr/min, la présence de gaz diminue les performances de l'agitateur comme le montre la Figure 6. Cette figure est très semblable à celle obtenue en milieu agité et traduisant l'évolution de la puissance d'agitation en fonction du débit de gaz (Nguyen, 1993 ; Anastassiades, 1995) : l'agitation mécanique casse les bulles en bulles plus petites, augmente la rétention gazeuse, et diminue la puissance dissipée dans le mélange gaz-liquide, ceci de manière d'autant plus marquée que  $N$  est élevé.

Nous avons déjà signalé que, pour  $N = 2000$  tr/min, la vitesse de circulation du liquide diminue dès qu'on introduit un faible débit de gaz puis augmente à nouveau. Cette diminution de vitesse est le résultat de deux effets contradictoires : l'agitateur qui induit une circulation du liquide du riser vers le downcomer, et la présence de gaz dans le downcomer liée aux bulles de petite taille et au phénomène d'auto-aspiration ( $\varepsilon_{gd} > \varepsilon_{gr}$ ) qui tend à s'opposer à cette circulation. Ce phénomène reste sensible jusqu'à  $u_g = 2$  cm/s ce qui correspond à  $\varepsilon_{gd} = \varepsilon_{gr}$ .

En conclusion, la variation a priori complexe de la vitesse de circulation du liquide à l'intérieur d'un réacteur airlift agité correspond à deux effets bien identifiés : l'influence de l'agitateur est plus ou moins marquée suivant la vitesse de rotation, la présence de gaz diminuant son efficacité; l'influence du gaz est contraire à celle de l'agitateur si  $\varepsilon_{gd}$  est supérieur à  $\varepsilon_{gr}$  et évolue dans le même sens si  $\varepsilon_{gd}$  est plus petit que  $\varepsilon_{gr}$ .

Nous avons également montré que le rôle du système d'agitation est similaire dans le cas de solutions plus visqueuses de glucose ou dans le cas d'un système triphasique (Bang, 1996).

#### ÉTUDE DU TRANSFERT DE MATIÈRE

Nous reportons ici, quelques résultats relatifs au transfert de matière : l'objectif étant d'identifier l'influence de l'agitateur à la fois sur les caractéristiques hydrodynamiques et

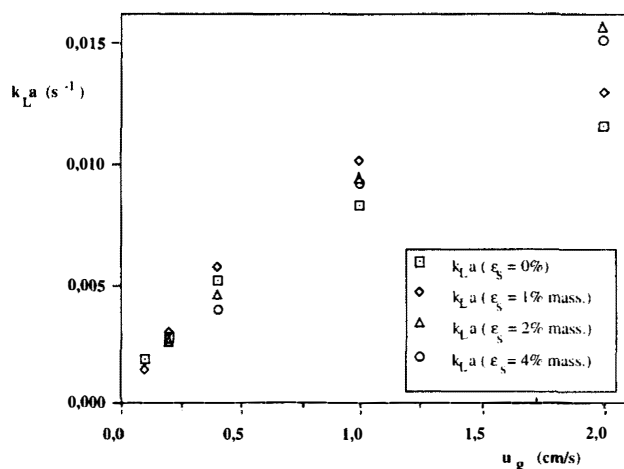


Figure 7 — Coefficient de transfert de matière en fonction de la vitesse du gaz ; influence de la rétention en solide (sans agitation).

sur le transfert de matière. Les résultats détaillés portant sur le transfert de matière sont présentés par ailleurs (Bang et al., 1998).

#### Réacteur sans agitation mécanique

Dans le réacteur dépourvu d'agitation mécanique, augmenter la vitesse du gaz  $u_g$  est sans doute le moyen le plus simple et le plus efficace d'augmenter  $k_L a$ . En effet, on accroît ainsi le taux de rétention gazeuse  $\varepsilon_g$ , donc l'aire interfaciale 'a', et donc  $k_L a$ . La Figure 7 montre que  $k_L a$  varie de 0,002 à 0,012 s<sup>-1</sup> quand  $u_g$  passe de 0,1 à 2 cm/s. Ces résultats concordent avec ceux d'autres auteurs (Chisti et al., 1987 ; Smith et al., 1990), pris dans des conditions analogues.

Concernant l'influence de la charge en solide,  $k_L a$  augmente d'un facteur 1,5 quand  $\varepsilon_s$  passe de 0 à environ 2% massique, puis diminue quand  $\varepsilon_s$  atteint 4% (Figure 7). Smith et al. (1990) ont observé la même tendance : les valeurs maximales de  $k_L a$  sont atteintes pour  $\varepsilon_s = 1,4\%$ . De nombreuses interprétations du rôle du solide divisé sur le transfert gaz-liquide ont été avancées. L'augmentation de  $k_L a$  en présence de solide pourrait être liée à un amincissement du film liquide autour des bulles, amincissement dû au passage des particules à proximité de l'interface. Ainsi  $k_L$  augmente. Mais quand la concentration en particules s'accroît, celles-ci peuvent être enfermées entre deux bulles qui se rapprochent ; elles favorisent alors la coalescence des bulles en aidant la rupture du film, et réduisent ainsi l'aire interfaciale globale 'a' dans le réacteur, et donc  $k_L a$  (Bang et al., 1998).

La valeur de  $k_L a$  est divisée par un facteur 3 lorsque la viscosité du liquide passe de 0,001 à 0,0049 Pa.s (Figure 8). On sait qu'une viscosité élevée favorise la coalescence des bulles mais aussi diminue le coefficient de transfert  $k_L$  (Smith et al., 1990).

Cependant le transfert de matière semble plus efficace au sein d'une solution juste un peu plus visqueuse que l'eau (0,014 Pa.s). Ce résultat déjà obtenu avec d'autres additifs comme le polyéthylène-glycol (Mawlana, 1987) montre que la prise en compte de la viscosité du liquide ne peut expliquer à elle seule les variations de  $k_L a$ . D'autres phénomènes doivent être considérés caractéristiques des variations de la tension interfaciale du milieu.

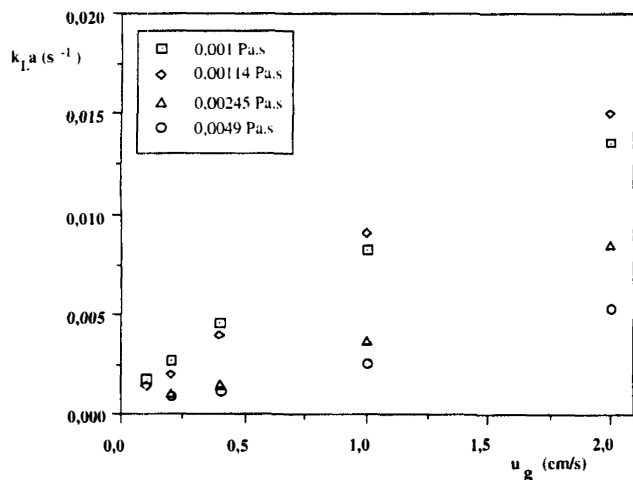


Figure 8 — Coefficient de transfert de matière en fonction de la vitesse du gaz ; influence de la viscosité du liquide (sans agitation).

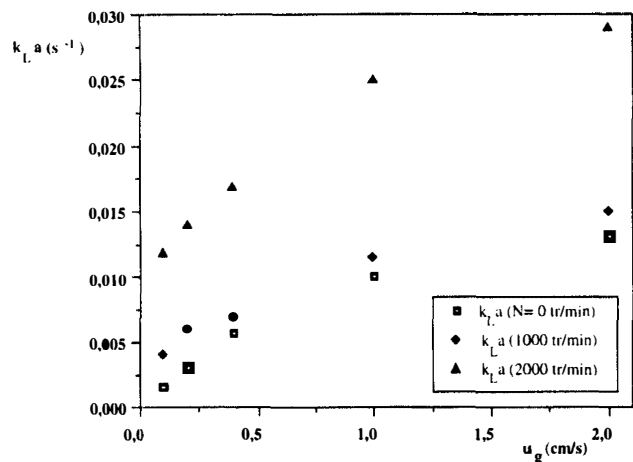


Figure 9 — Coefficient de transfert de matière en fonction de la vitesse du gaz ; (avec agitation ; rétention en solide 2%).

### Réacteur mécaniquement agité

Nous présentons ici directement des résultats optimaux sur le transfert de matière, obtenus en milieu triphasique aqueux avec 2% de rétention de solide. En effet les tendances constatées en milieu diphasique sont les mêmes, les valeurs de  $k_L a$  étant environ 1,5 fois plus faibles qu'en présence de particules solides.

La Figure 9 montre clairement que  $k_L a$  est fortement accru lorsque  $u_g$  augmente, et sa valeur est 4 fois plus élevée à  $N = 2000$  tr/min qu'à  $N = 0$ , pour de faibles valeurs du débit de gaz.

On constate que l'effet du débit gazeux et celui de l'agitation s'ajoutent, alors que pour la circulation du liquide ils s'opposaient partiellement. En effet, l'aspiration de gaz à la surface libre, due à l'agitation et surtout sensible dans la zone descendante, est bénéfique au transfert de matière du gaz vers le liquide tant que le ciel gazeux est riche en gaz à transférer (ici  $O_2$ ). Comme l'augmentation de  $u_g$ , ce phénomène augmente  $\varepsilon_g$ , et donc l'aire interfaciale dans le réacteur. La Figure 10 montre que, pour une même valeur de  $\varepsilon_g$ , le transfert de matière est plus élevé lorsqu'on utilise le système d'agitation. Ce résultat met en évidence que le transfert de matière n'est pas uniquement lié à la rétention

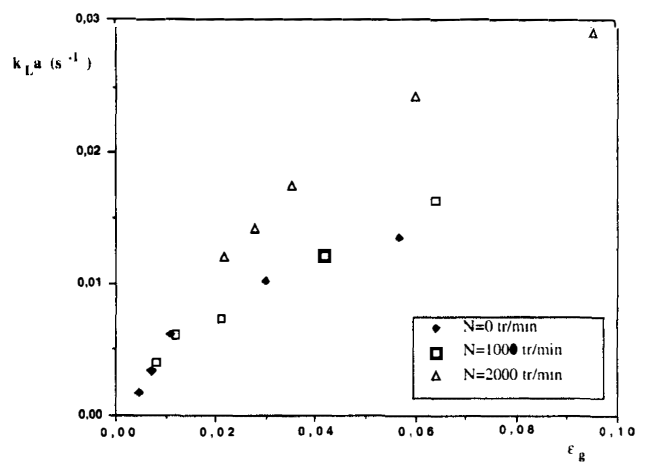


Figure 10 — Coefficient de transfert de matière en fonction de la rétention gazeuse ; (avec et sans agitation mécanique).

gazeuse. Ainsi, cette augmentation serait liée essentiellement à une augmentation du coefficient de transfert  $k_L$  ( $a$  restant constant) : l'agitation diminuant le film liquide autour des bulles de gaz. Le rôle de l'agitation est donc multiple : outre l'effet d'auto-aspiration, elle engendre un courant axial de liquide, ascendant dans la colonne centrale puis descendant dans la zone annulaire, amincissant le film liquide autour des bulles et les fractionnant en bulles de plus petite taille. Celles-ci séjournent donc plus longtemps dans l'appareil, ce qui favorise encore le transfert de matière.

Il ressort de cette étude expérimentale que l'agitation du milieu par l'ascension des bulles ou par action mécanique, ainsi que la présence d'un peu de solide en suspension, favorisent le transfert de matière gaz-liquide. Il est à présent nécessaire de mesurer la taille des bulles et d'identifier l'aire d'échange  $a$  en présence ou non du système d'agitation, pour évaluer plus précisément l'effet de l'agitateur sur le coefficient de transfert de matière  $k_L$  en airlift agité. Ceci sera effectué dans une étude ultérieure.

### Contributions énergétiques au transfert de matière

L'énergie fournie au milieu réactionnel dans le réacteur airlift est due à la fois aux bulles de gaz et à l'agitation mécanique. Comme d'autres auteurs (Smith, 1990, et Keitel, 1981), nous avons corrélé  $k_L a$  en fonction de la puissance dissipée par l'expansion isotherme du gaz par unité de volume de liquide non aéré,  $P_A$ , et en fonction de la puissance d'agitation mécanique par unité de volume non aéré,  $P_{ag}$  :

$$k_L a = 3 \times 10^{-4} (1 + 15,8 \varepsilon_s - 353 \varepsilon_s^2) (P_A^{0,82} + P_{ag}^{0,47}) \dots (10)$$

Cette corrélation est valable dans les gammes de paramètres suivantes :

$$\begin{aligned} 0 \leq \varepsilon_s &\leq 4\% \\ 0 \leq P_A &\leq 14,5 \text{ W/m}^3 \\ 0 \leq P_{ag} &\leq 2050 \text{ W/m}^3 \end{aligned}$$

Il a été montré que l'accord entre cette corrélation et nos résultats expérimentaux est bon (Bang, 1996).

Nous pouvons alors chiffrer la contribution au transfert de matière de chacun des deux termes énergétiques  $P_A$  et  $P_{ag}$ . La différence des exposants des deux puissances fournies



respectivement par le gaz (0,82) et par l'agitateur (0,47) met en évidence la moindre efficacité de l'agitation mécanique. A titre d'exemple, d'après la Figure 9,  $k_L a$  prend approximativement la même valeur de  $0,012 \text{ s}^{-1}$  lorsque  $u_g$  vaut  $2,0 \text{ cm/s}$ , sans agitation mécanique, et lorsque  $u_g$  vaut  $0,3 \text{ cm/s}$ , avec une agitation de  $2000 \text{ tr/min}$ . Pour atteindre cette valeur de  $k_L a$  avec seulement  $u_g = 0,3 \text{ cm/s}$ , l'agitateur a fourni au réacteur  $8 \text{ W}$ , et l'expansion du gaz  $0,08 \text{ W}$ . Le même résultat est obtenu sans agitation, avec  $u_g = 2,0 \text{ cm/s}$ , ce qui correspond à un apport d'énergie de seulement  $0,53 \text{ W}$ .

## Conclusions

Cette étude paramétrique d'un gazosiphon à boucle interne agité par une hélice marine a permis de comprendre l'hydrodynamique de ce réacteur et de quantifier l'effet bénéfique de l'agitation mécanique sur la circulation du liquide et sur le transfert de matière. Ce réacteur rend possible un fonctionnement en milieu triphasique avec des particules de taille et de masse volumique importantes. On peut même couper l'alimentation gazeuse tout en maintenant de bonnes conditions hydrodynamiques. Ceci est intéressant pour les procédés catalytiques et biocatalytiques qui exigent l'arrêt du gaz pour la régénération du (bio)catalyseur.

Cependant cet apport est coûteux en énergie et ceci doit restreindre l'utilisation de l'hélice en gazosiphon aux cas où le débit de gaz doit rester faible, pour des raisons de stoechiométrie, de coût du réactif gazeux ou de sécurité. D'un point de vue énergétique, il est préférable d'augmenter le débit gazeux (et donc d'organiser une circulation du gaz en excès) que de fournir de l'énergie par l'intermédiaire d'un agitateur.

De plus, en milieu agité, le transfert de matière n'est pas uniquement lié à la rétention gazeuse. Le système d'agitation modifie l'écoulement autour des bulles de gaz augmentant ainsi le coefficient de transfert  $k_L$ . La généralisation de ce résultat ne peut être faite qu'après identification de l'aire d'échange en mesurant la taille des bulles. Cette étude est actuellement en cours sur un réacteur airlift interne similaire, mais agité par une turbine à pales inclinées.

## Nomenclature

$a, b$	= constantes
$A_b$	= aire libre pour la recirculation du liquide, ( $\text{m}^2$ )
$A_d$	= aire de section droite du downcomer, ( $\text{m}^2$ )
$A_r$	= aire de section droite du riser, ( $\text{m}^2$ )
$C_L$	= concentration en oxygène dissous dans le liquide, ( $\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$ )
$C_L^*$	= concentration en oxygène à l'interface, ( $\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$ )
$D_a$	= diamètre de l'agitateur, (m)
$d_p$	= diamètre des particules, (m)
$g$	= accélération de la pesanteur, ( $\text{m} \cdot \text{s}^{-2}$ )
$h_{ag}$	= différence de hauteur apportée par le système d'agitation, (m)
$H_d$	= hauteur de la dispersion gaz liquide, (m)
$K_p, K_b$	= coefficients de pertes de charge
$k_L$	= coefficient de transfert de matière, ( $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ )
$k_L a$	= coefficient volumétrique de transfert de matière en phase liquide, ( $\text{s}^{-1}$ )
$N$	= vitesse de rotation de l'agitateur, ( $\text{tr} \cdot \text{min}^{-1}$ )
$N_p$	= nombre de puissance
$P_A$	= puissance liée à l'expansion du gaz, (W)
$P_{ag}$	= puissance mécanique de l'agitateur, (W)
$V^{ag}$	= volume du liquide dans le réacteur, ( $\text{m}^3$ )
$u_l$	= vitesse superficielle du liquide, ( $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ )
$u_g$	= vitesse superficielle du gaz, ( $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ )

## Lettres grecques

$\alpha, \beta$	= exposants
$\varepsilon_g, \varepsilon_l, \varepsilon_s$	= rétention gazeuse, liquide, solide
$\mu$	= viscosité du liquide, ( $\text{Pa} \cdot \text{s}$ )
$\rho, \rho_g$	= masse volumique du liquide et du gaz, ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ )

## Références bibliographiques

- Anastassiades, E., "Etude du fonctionnement de mobiles autoaspirants dans les réacteurs agités gaz liquide", Thèse de Doctorat INPL, Nancy, France (1995).
- Bang, W., I. Nikov, A. M. Wilhelm, H. Delmas and A. Bascoul, "Hydrodynamique des réacteurs airlift munis d'un système d'agitation ; Résultats expérimentaux et modélisation", *Récents Progrès en Génie des Procédés*, **42**, 7–12 (1995).
- Bang, W., I. Nikov, H. Delmas and A. Bascoul, "Gas-Liquid Mass Transfer in a New Three Phase Stirred Airlift Reactor", *J. Chem. Technol. Biotechnol.* **72**, 137–142 (1998).
- Bang, W., "Le gazosiphon agité : un nouveau réacteur catalytique", Thèse de Doctorat INPT, Toulouse, France (1996).
- Chisti, M. Y. and M. Moo-Young, "On Liquid Circulation in an External Loop Airlift Reactors", *J. Chem. Tech. Biotech.* **59**, 101–103 (1994).
- Chisti, M. Y. and M. Moo-Young, "Improve the Performances of Airlift", *Chem. Eng. Prog.* 33–45 (1993).
- Chisti, M. Y., B. Halard and M. Moo-Young, "Liquid Circulation in Airlift Reactors", *Chem. Eng. Sci.* **43**, 451–457 (1987).
- Chisti, M. Y., F. Wenge and M. Moo-Young, "Relationship Between Riser and Downcomer Gas Hold-up in Internal Loop Airlift Reactors without Gas Liquid Separators", *The Chem. Eng. J.* **57**, 7–13 (1995).
- Dutta, N. N. and V. G. Pangarkar, "Critical Impeller Speed for Solid Suspension in Multi-impeller Three Phase Agitated Contactors", *Can. J. Chem. Eng.* **73**, 273–283 (1995).
- Favre, E., M. Derond and P. Peringer, "Influence of a Rotating Sieve on Pumping and Mixing Performances in an Internal Loop Reactor", *Bioprocess Engineering* **11**, 91–95 (1994).
- Gravrilescu, M., R. V. Roman and R. Z. Tudose, "Hydrodynamics in External Airlift Bioreactors with Static Mixers", *Bioprocess Engineering* **16**, 93–99 (1997).
- Keitel, G. and U. Onken, "Gas-Liquid Mass Transfer in a Stirred Loop Reactor", *Ger. Chem. Eng.* **4**, 250–258 (1981).
- Koide, K., M. Terasawa and H. Takekawa, "Critical Gas Velocity Required for Complete Suspension of Multicomponent Solid Particles Mixture in Solid Suspended Bubble Columns with and without Draught Tube.", *J. Chem. Eng. of Japan* **19**, 341–344 (1986).
- Mawlana, M., "Etude en régime permanent et transitoire du transfert gaz-liquide. Cas d'un réacteur fluidisé gaz-liquide-solide", "Thèse de Doctorat INPT, Toulouse, France (1987).
- Nguyen, C., "Etude et comparaison de trois contacteurs gaz liquide à auto-aération", Thèse de Doctorat INPL, Nancy, France (1993).
- Siegel, M. H. and C. W. Robinson, "Applications of Airlift Gas Liquid Solid Reactors in Biotechnology", *Chem. Eng. Sci.* **47**, 3215–3229 (1992).
- Smith, B. C. and D. R. Skidmore, "Mass Transfer Phenomena in an Airlift Reactor: Effects of Solid Loading and Temperature", *Biotech. and Bioeng.* **35**, 483–491 (1990).